

Japanese Kokai Patent Application No. Hei 9[1997]-241397

BEST AVAILABLE COPY

Translated from Japanese by the Ralph McElroy Co., Custom Division
P.O. Box 4828, Austin, Texas 78765 USA

1

Code: 381-60141

JAPANESE PATENT OFFICE

PATENT JOURNAL

KOKAI PATENT APPLICATION NO. HEI 9[1997]-241397

Technical Disclosure Section

Int. Cl.⁶:

C 08 J 5/04
C 03 C 13/00
C 08 L 71/12
// C 08 K 3/38
7/14
C 08 K 9/02
C 08 J 5/04
C 03 C 13/00
C 08 L 71/12
C 08 K 3/38
7/14
C 08 K 9/02

Application No.:

Hei 8[1996]-92950

Application Date:

March 11, 1996

Publication Date:

September 16, 1997

No. of Claims:

2 (Total of 4 pages)

Examination Request:

Not requested

GLASS FIBERS AND A METHOD FOR THE MANUFACTURE OF THE
GLASS-FIBER-REINFORCED POLYPHENYLENE ETHER USING THESE

Inventors:

Satoru Yanagisaura
Fuji Fiber Glass Co.
Ltd., Maska Plant
6 Oninugaska, Maoka-shi,
Tochigi-ken

Takeki Akutsu
Fuji Fiber Glass Co.
Ltd., Maska Plant
6 Oninugaska, Maoka-shi,
Tochigi-ken

Toshio Kaemi
Fuji Fiber Glass Co.
Ltd., Maska Plant
6 Oninugaska, Maoka-shi,
Tochigi-ken

Applicant:

000237145
Fuji Fiber Glass Co.
Ltd.
6 Oninugaoka, Maoka-shi,
Tochigi-ken

[There are no amendments to this patent.]

Abstract

Objective

During the reinforcement of a polyphenylene ether resin (also including modified polyphenylene ether) with glass fibers, glass fibers treated with a special agent are used to increase the adherence between the polyphenylene ether (to be abbreviated as PPE hereafter) resin and glass fibers to obtain a molded

3

product with a remarkable improvement in the reinforcing effect of such glass fibers with respect to the PPE resin.

Constitution

Glass fibers containing more than 0.01% of a boron compound in the treating agent for glass fibers with respect to the weight of the glass fibers, as well as a method for the manufacture of glass-fiber-reinforced polyphenylene ether obtained by molding using these.

Claims

1. Glass fibers treated with an agent containing a boron compound.
2. A method for the manufacture of glass-fiber-reinforced polyphenylene ether molded using glass fibers treated with an agent containing a boron compound.

Detailed explanation of the invention

[0001]

Industrial application field

The present invention relates to glass fibers that can be used in glass-fiber-reinforced polyphenylene ether (to be abbreviated as FR-PPE hereafter) and to a method for the manufacture of the FR-PPE molded using these.

[0002]

Prior art

Conventionally, in the manufacture of glass fibers, a method is carried out in which glass is melted in a furnace, drawn from multiple small holes called bushings, applied with an appropriate treating agent via an applicator, stretched so that it is from a few microns to more than 10 microns, then dried. The glass-fiber treating agent used for the FR-PPE consists of a film forming agent with a synthetic resin as a major component, a coupling agent, a surfactant, a lubricant, an electrostatic inhibitor, etc. For the glass fibers treated with such a publicly known treating agent, in the case of kneading with PPE by an extrusion molding machine or an injection molding machine, the adhesiveness of the PPE and the glass composition is poor and the mechanical characteristics of the molded product are insufficient.

[0003]

Problems to be solved by the invention

The task to be solved by the present invention is to provide glass fibers with an increased adhesiveness between such glass fibers and the PPE resin, and to provide an improvement in the reinforcing effect of glass fibers with respect to the PPE resin. Furthermore, using the glass fibers mentioned previously, a method is provided for the manufacture of a molded product

having remarkably better physical properties than the conventional ones.

[0004]

Means to solve the problems

The present invention has been discovered as a result of the accumulation of zealous investigations in order to upgrade the reinforcing effect of glass fibers with FR-PPE. In other words, the present invention involves glass fibers characterized by the fact a boron compound is blended in a treating agent of such glass fibers. Furthermore, it is a method for the manufacture of FR-PPE molded using this. As the boron compounds mentioned in the present invention, sodium borate, boric acid, boric acid anhydride, ammonium borate, and sodium hydrogen borate can be mentioned. The specially preferred one is boric acid or boric acid anhydride. It is present at more than 0.001 wt% and less than 2 wt% with respect to the weight of the glass fibers. If the boron compound is present at less than 0.001 wt%, the adhesiveness with the PPE is not satisfactory. If it exceeds 2 wt% it is not economical. It is also acceptable that the treating agent referred to in the present invention be used together with a publicly known synthetic resin emulsion coupling agent, surfactant, etc. As the synthetic resin emulsions, those of polyvinyl acetate, unsaturated polyesters, polyethylene, polyurethane, epoxy resins, polystyrene, acrylic resins, or their copolymers and so on can be mentioned. Among these, one or more may be used in combinations. Furthermore, a variety of ordinary coupling agents added to the treating agents

of glass fibers include, for example, one or more coupling agents selected from vinyl tris (β -methoxyethoxy)silane, γ -methacryloxypropyltrimethoxysilane, γ -glycidoxypropyltrimethoxysilane, γ -aminopropyltriethoxysilane, methacrylate chromic chloride, N-B(N-vinylbenzylamino), γ -aminopropyltriethoxy silane hydrogen chloride, etc. It is also acceptable to add appropriately nonic or catonic surfactants, for example, one or more surfactants selected from polyoxyethylene alkyl ethers, polyoxyethylene alkylphenols, fatty acid sorbitan esters, alkyl quaternary ammonium salts, alkylamine salts, alkyl imidazoline derivatives, etc. Furthermore, it is also acceptable to use a lubricant, an antioxidant, an electrostatic inhibitor, or other additives. The compositions of the glass fibers of the present invention are glass for electrical insulation and ordinary E glass. In addition, C glass, A glass, T glass, and so on may also be appropriately used. The PPE that can be used in the present invention includes poly-2,6-dimethyl phenylene ether and modified polyphenylene ether. The modified polyphenylene ether includes the materials obtained by the blending and kneading of ABS, AS, and other polystyrene-type resins, as well as high-impact polystyrene, polybutadiene, and other diene-type rubber or nylon resins, and so on used as modifying agents in the poly-2,6-dimethyl phenylene ether mentioned previously. The FR-PPE of the present invention is obtained by the kneading and molding of the previously mentioned glass fibers and PPE by a publicly known extruding machine or injection molding machine. However, in these kneading methods, ordinary methods can be used without special restrictions. The blending amount of glass fibers in the molding material is from 5-50 wt%. Ordinarily,

15-30 wt% is appropriate. Furthermore, depending on the application, a flame retardant, filler, stabilizer, plasticizer, pigment, and so on can be blended.

[0005]

Application examples

Application examples are given in the following and the present invention will be explained in detail. However, the present invention is not to be restricted by these application examples in any way.

Application Examples 1 through 5

Treatment was carried out with the compositions shown in Table I as glass-fiber treating agents. The amounts showed the wt% with respect to the weight of the glass fibers.

Table I

処理剤組成 ①	実施例 ②				
	1	2	3	4	5
③ γ-アミノプロピルトリエトキシラン	1.0部⑩	1.0部⑩	1.0部⑩	1.0部⑩	1.0部⑩
④ ホウ酸	0.1部⑩	0.1部⑩	0.1部⑩	0.1部⑩	0.1部⑩
⑤ ホウ酸アンモニウム	0.01部⑩	0.1部⑩	1.0部⑩		
⑥ ホウ酸ナトリウム				0.1部⑩	
⑦ 脱イオン水	残部⑪	残部⑪	残部⑪	残部⑪	残部⑪

⑧ *ポリウレタンエマルジョン：無黄変性ポリウレタンの水分散液

- Key: 1 Treating agent composition
 2 Application Example
 3 *Polyurethane emulsion
 4 γ-Aminopropyltriethoxysilane
 5 Boric acid
 6 Ammonium borate
 7 Sodium borate
 8 Deionized water
 9 *Polyurethane emulsion: Water-dispersed solution of non-yellowing polyurethane
 10 Part
 11 Balance

The treating agent mentioned previously was coated on 1600 glass filaments with a filament diameter of 13 μm obtained by melt-spinning using an applicator roll; these were wound on a rotary drum with a diameter of 300 mm. This strand wound body was afterwards cut to 3 mm with a cutting machine and dried with

a dryer at 130°C for 60 min to remove the water to obtain the treated glass fibers.

Table II

① 樹脂組成	A	B
② 日本GEプラスチック株式会社ノリル731J PPE樹脂一般タイプ	70部⑤	—
③ 日本GEプラスチック株式会社ノリルSEI PPE樹脂難燃タイプ	—	70部⑤
④ ガラス繊維	30部⑤	30部⑤

- Key: 1 Resin composition
 2 Noryl 731 J PPE resin, general type, manufactured by Japan GE Plastics Co.
 3 Noryl SEI PPE resin, difficulty combustible type, manufactured by Japan GE Plastics Co.
 4 Glass fibers
 5 Parts

Next, the resin composition shown in Table II was mixed in a blender, then extruded with a 30-mm-diameter biaxial extruder at a melt temperature of 290°C, forming pellets of FR-PPE with a pelletizer. These pellets were subjected to injection molding at a cylinder temperature of 300°C and a mold temperature of 80°C to obtain a molded product of FR-PPE. The evaluations of the molded products were carried out according to JIS K-7113, K-7203, and K-7110 to measure the tensile strength, bending

10

strength, and Izod impact strength. The adhesiveness between the glass fibers and the PPE resin was obtained by visual observation of the ruptured surface of the molded product after the impact test using SEM. The results are shown in Table III.

[0006]

Comparative example

Glass fibers and molded products were manufactured and evaluated by the same methods as those shown for Application Examples 1-5, except that no boric acid was added in Application Example 1. The evaluation results are shown in Table III.

[0007]

Effects of the present invention

According to the present invention, it is obvious that the adhesiveness between the glass fibers and PPE resin is good, and that the mechanical strength of the FR-PPE molded product is remarkably good.

Table III

	実施例①					比較例②	実施例①					比較例②
	1	2	3	4	5	1	1	2	3	4	5	1
樹脂組成③	Aの場合⑧						Bの場合⑨					
引張り強度④ (kg/cm ²)	1150	1200	1190	1200	1200	1100	880	950	930	920	980	780
曲げ強度⑤ (kg/cm ²)	1660	1750	1720	1780	1770	1520	1260	1350	1330	1380	1350	1150
アイゾット衝撃強度⑥ (kg·cm/cm)	14.8	15.5	15.5	15.8	15.5	13.7	7.2	8.5	8.3	8.6	8.5	6.8
*SEMによるガラス繊維とPPE樹脂との界面接着観察⑦	○	◎	◎	◎	◎	△	△	◎	◎	◎	◎	×

- Key: 1 Application Example
 2 Comparative Example
 3 Resin composition
 4 Tensile strength (kg/cm²)
 5 Bending strength (kg/cm²)
 6 Izod impact strength (kg·cm/cm)
 7 *Observation of adhesiveness of the rupture surface of glass fibers and PPE resin by SEM
 8 Case A
 9 Case B

Adhesiveness of glass fibers-PPE resin:

Wetted very well ◎
 Wetted well ○
 Slightly wetted △
 Not wetted at all X

2/9/1

DIALOG(R)File 351:DERWENT WPI

(c)1997 Derwent Info Ltd. All rts. reserv.

011532446

WPI Acc No: 97-508927/199747

XRAM Acc No: C97-162299

Glass fibre manufacture - comprises treating with a treating agent containing a boron compound, provides glass fibre exhibiting strong adhesion to polyphenylene resin

Patent Assignee: FUJI FIBRE GLASS CO LTD (FUJI-N)

Number of Countries: 001 Number of Patents: 001

Patent Family:

Patent No	Kind	Date	Applicat No	Kind	Date	Main IPC	Week
JP 9241397	A	19970916	JP 9692950	A	19960311	C08J-005/04	199747 B

Priority Applications (No Type Date): JP 9692950 A 19960311

Patent Details:

Patent	Kind	Lan	Pg	Filing Notes	Application	Patent
JP 9241397	A		4			

Abstract (Basic): JP 9241397 A

The glass fibre is treated with a treating agent which contains a boron compound.

Also claimed is a glass fibre-reinforced polyphenylene ether prepared by use of the above glass fibre.

ADVANTAGE - The glass fibre shows strong adhesion to polyphenylene ether resin and improves effect of reinforcement of polyphenylene ether with glass fibre to a marked extent.

Dwg.0/0

Title Terms: GLASS; FIBRE; MANUFACTURE; COMPRISE; TREAT; TREAT; AGENT;

CONTAIN; BORON; COMPOUND; GLASS; FIBRE; EXHIBIT; STRONG; ADHESIVE; POLY; PHENYLENE; RESIN

Derwent Class: A25; E37; F06

International Patent Class (Main): C08J-005/04

International Patent Class (Additional): C03C-013/00; C08K-003/38; C08K-007/14; C08K-009/02; C08L-071/12

File Segment: CPI

Manual Codes (CPI/A-N): A05-H07A; A08-M01; A08-R04; A12-S08B; E31-Q; E31-Q04; E31-Q05; E31-Q06; E31-Q07; F01-D09B; F01-H06B; F03-D

Record - 48

DIALOG(R)File 351:DERWENT WPI
(c)1998 Derwent Info Ltd. All rts. reserv.

011556048

WPI Acc No: 97-532529/199749

Bundling agent for glass fibre - contains colloidal silica

Patent Assignee: NITTO BOSEKI CO LTD (NITO)

Number of Countries: 001 Number of Patents: 001

Patent Family:

Patent No	Kind	Date	Applicat No	Kind	Date	Main IPC	Week
JP 9255374	A	19970930	JP 9686007	A	19960315	C03C-025/02	199749 B

Priority Applications (No Type Date): JP 9686007 A 19960315

Patent Details:

Patent	Kind	Lan	Pg	Filing Notes	Application	Patent
JP 9255374	A		3			

Abstract (Basic): JP 9255374 A

The bundling agent for reinforcing glass fibre, contains 0.02 - 4 wt. % colloidal silica.

USE - The bundling agent is used for reinforcing glass fibre.

ADVANTAGE - The fibre reinforced heat plastic resin formation having high mechanical strength is formed by improving the dispersing ability of glass fibre.

Dwg.0/0

Derwent Class: A60; L01

International Patent Class (Main): C03C-025/02

International Patent Class (Additional): C08J-005/08

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平9-241397

(43) 公開日 平成9年(1997)9月16日

(51) Int.Cl. ⁶	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
C 0 8 J 5/04	C E Z		C 0 8 J 5/04	C E Z
C 0 3 C 13/00			C 0 3 C 13/00	
C 0 8 L 71/12	L Q N		C 0 8 L 71/12	L Q N
// C 0 8 K 3/38			C 0 8 K 3/38	
7/14			7/14	
審査請求 未請求 請求項の数 2 書面 (全 4 頁) 最終頁に続く				

(21) 出願番号 特願平8-92950

(22) 出願日 平成8年(1996)3月11日

(71) 出願人 000237145

富士ファイバーグラス株式会社

栃木県真岡市鬼怒ヶ丘6番地

(72) 発明者 柳沢 覚

栃木県真岡市鬼怒ヶ丘6番地富士ファイバ

ーグ ラス株式会社真岡工場内

(72) 発明者 阿久津 健樹

栃木県真岡市鬼怒ヶ丘6番地富士ファイバ

ーグ ラス株式会社真岡工場内

(72) 発明者 返見 俊雄

栃木県真岡市鬼怒ヶ丘6番地富士ファイバ

ーグ ラス株式会社真岡工場内

(54) 【発明の名称】 ガラス繊維及びそれを用いたガラス繊維強化ポリフェニレンエーテルの製造法

(57) 【要約】

【目的】 ポリフェニレンエーテル樹脂（変性ポリフェニレンエーテルも含む）をガラス繊維によって補強する際、特殊なガラス繊維処理剤組成で処理したガラス繊維を使用しポリフェニレンエーテル（以下PPEと略す）樹脂とガラス繊維との接着性を高め、PPE樹脂に対するガラス繊維の補強効果を著しく向上した成形品を得る。

【構成】 ガラス繊維の処理剤の中にホウ素化合物をガラス繊維の重量に対し0.01%以上含むガラス繊維及び、これを用いて成形したガラス繊維強化ポリフェニレンエーテルの製造法。

【特許請求の範囲】

【請求項1】 ホウ素化合物を含む処理剤で処理したガラス繊維。

【請求項2】 ホウ素化合物を含む処理剤で処理したガラス繊維を用いて成形したガラス繊維強化ポリフェニレンエーテルの製造法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】本発明は、ガラス繊維強化ポリフェニレンエーテル（以下FR-PPEと略す）に用いられるガラス繊維及びそれを用いて成形したFR-PPEの製造法に関するものである。

【0002】

【従来の技術】従来から、ガラス繊維を製造するには、ガラスを炉中で熔融しブッシングと呼ばれる多数の細孔から引き出し、適当な処理剤をアプリケーションを介して施し、数ミクロンから十ミクロンになる様に延伸しその後乾燥する方法が行われている。FR-PPE用に用いられるガラス繊維処理剤は、合成樹脂を主成分とするフィルム形成剤とカップリング剤、界面活性剤、平滑剤及び帯電防止剤等により構成されるが、このような公知の処理剤で処理したガラス繊維では押出成形機又は射出成形機によりPPEと混練し成形した場合PPEとガラス組成の接着性が乏しく、成形品の機械的特性は不十分な効果しか得られない。

【0003】

【発明が解決しようとする課題】本発明が解決しようとしている課題は、ガラス繊維とPPE樹脂との接着性を高め、PPE樹脂に対するガラス繊維の補強効果が著しく向上するガラス繊維を提供することにある。さらに、上記のガラス繊維を用いる事により、従来より著しく良好な物性を有する成形品を製造する方法を提供することにある。

【0004】

【課題を解決するための手段】本発明者らはFR-PPEでのガラス繊維の補強効果を向上させるために鋭意研究を重ねた結果本発明を見い出した。即ち、本発明はガラス繊維の処理剤の中にホウ素化合物を配合し、処理したことを特徴とするガラス繊維であり、さらにこれを用いて成形したFR-PPEの製造法である。本発明でいうホウ素化合物は、ホウ酸ナトリウム、ホウ酸、無水ホウ酸、ホウ酸アンモニウム、水素化ホウ酸ナトリウムが挙げられるが、特に望ましくは、ホウ酸又は無水ホウ酸であり、ガラス繊維重量に対して0.01重量%以上、2重量%以下である。ホウ素化合物が0.01重量%以下ではPPEとの接着性を満足する事ができず、2重量%以上では経済的でない。本発明でいう処理剤は公知の

合成樹脂エマルジョン、カップリング剤、界面活性剤等を併用しても差し支えない。合成樹脂エマルジョンとはポリ酢酸ビニル、不飽和ポリエステル、ポリエチレン、ポリウレタン、エポキシ樹脂、ポリスチレン、アクリル樹脂あるいはこれらの共重合物等のエマルジョンが挙げられ、この中から1種もしくは数種を併用しても良い。また、通常ガラス繊維の処理剤に添加されている各種カップリング剤は例えば、ビニルトリス（ β -メトキシエトキシ）シラン、 γ -メタクロキシプロピルトリメトキシシラン、 γ -グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、 γ -アミノプロピルトリエトキシシラン、メタクリレートクロミッククロライド、N-B（Nビニルベンジルアミノ）、 γ -アミノプロピルトリエトキシシラン塩酸塩等から選ばれた1種もしくは数種のカップリング剤と非イオン、陽イオン系の界面活性剤、例えばポリオキシエチレンアルキルエーテル、ポリオキシエチレンアルキルフェノール、脂肪酸ソルビタンエステル、アルキル第四級アンモニウム塩、アルキルアミン塩、アルキルイミダゾリン誘導体等から選ばれた1種もしくは数種の界面活性剤を適宜添加しても良い。また平滑剤、酸化防止剤、帯電防止剤あるいはその他の添加剤を使用しても何等差し支える物ではない。本発明のガラス繊維の組成は電気絶縁用ガラス、通常Eガラスであるが、この他にCガラス、Aガラス、Tガラス等にも適用できる。本発明で用いるPPEはポリ2，6-ジメチルフェニレンエーテル、変性ポリフェニレンエーテルを含む。変性ポリフェニレンエーテルは上記ポリ2，6-ジメチルフェニレンエーテルにABS、ASの如きポリスチレン系樹脂、ハイインパクトポリスチレン、ポリブタジエンの如きジエン系ゴム又はナイロン樹脂等を変性剤として配合、混練したものを含む。本発明のFR-PPEは上記のガラス繊維とPPEを公知の押出機又は射出成形機により混練し、成形されるが、これらの混練方法に特に限定はなく常法を使用できる。成形材料中のガラス繊維の配合割合は5重量%から50重量%であり、通常は15重量%から30重量%が好適である。さらに用途によって難燃剤、充填剤、安定剤、可塑剤及び顔料等を配合する事ができる。

【0005】

【実施例】以下に実施例を示し、本発明を詳細に説明する。しかし本発明はこれらの実施例により何ら制限されるものではない。

【実施例1～5】ガラス繊維処理剤として表1に示す組成物により処理した。それぞれの値はガラス繊維の重量に対する重量%で示した。

【表1】

処理剤組成	実施例				
	1	2	3	4	5
ポリウレタンエマルジョン	1.0部	1.0部	1.0部	1.0部	
γ-アミノプロピルトリメトキシシラン	0.1部	0.1部	0.1部	0.1部	
ホウ酸	0.01部	0.1部	1.0部		
ホウ酸アンモニウム				0.1部	
ホウ酸ナトリウム					0.1部
脱イオン水	残部	残部	残部	残部	残部

上記処理剤を溶融紡糸したポリウレタンエマルジョン、無黄変性ポリウレタンの水分散液、ガラスフィラメント1600本にアプリケーションローラーで塗布し300mmφの回転ドラムに巻き取った。このストランド巻体は、その後切断機にて3mmに切断し乾燥機で130℃で60分間乾燥し水分を除去し、処理済みのガラス繊維を得た。

【表2】

樹脂組成	A	B
日本GEプラスチック社製ノリル31J PPE樹脂一般タイプ	70部	—
日本GEプラスチック社製ノリルSEI PPE樹脂難燃タイプ	—	70部
ガラス繊維	30部	30部

次に、表-2に示す樹脂組成物をブレンダーで混合し30mmφ2軸押出機にて熔融温度290℃にて押し出

た。このペレットをシリンダー温度300℃、金型温度80℃で射出成形しFR-PPEの成形品を得た。成形品の評価は、JIS K-7113、K-7203及びK-7110により引張り強度、曲げ強度、アイゾット衝撃強度を測定した。ガラス繊維とPPE樹脂との接着性はSEMにより衝撃試験後の成形品の破断面を目視観察した。結果を表-3に示す。

【0006】

【比較例】実施例1のホウ酸を無添加とした他は、実施例1～5で示した方法でガラス繊維及び成形品を製造し評価をした。その評価結果を表-3に示す。

【0007】

【本発明の効果】本発明によれば、ガラス繊維-PPE樹脂との接着性が良好となり、FR-PPE成形品の機械的強度が著しく良好になることは明白である。

【表3】

	実施例					比較例	実施例					比較例
	1	2	3	4	5	1	1	2	3	4	5	1
樹脂組成	Aの場合						Bの場合					
引張り強度 (kg/cm ²)	1150	1200	1190	1200	1200	1100	830	950	930	920	960	780
曲げ強度 (kg/cm ²)	1660	1750	1720	1780	1770	1520	1260	1350	1330	1330	1350	1150
アイゾット衝撃強度 (kg・cm/cm)	14.6	15.5	15.5	15.6	15.5	13.7	7.2	8.5	8.3	8.6	8.5	6.6
* SEMによるガラス繊維とPPE樹脂との接着性の観察	○	◎	◎	◎	◎	△	△	◎	◎	◎	◎	×

ガラス繊維-PPE樹脂との接着性

非常に良く濡れている ◎
 良く濡れている ○
 少し濡れている △
 全く濡れていない ×

フロントページの続き

(51) Int. Cl.⁶

C 0 8 K 9/02

識別記号

庁内整理番号

F I

C 0 8 K 9/02

技術表示箇所

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☒ FADED TEXT OR DRAWING
- ☒ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☒ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☒ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.